

E 5288

⑦

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2000-007661

(43)Date of publication of application : 11.01.2000

(51)Int.Cl.

C07D239/28

A01N 43/54

A01N 43/58

C07D237/24

(21)Application number : 10-192409

(71)Applicant : NIPPON NOHYAKU CO LTD

(22)Date of filing : 23.06.1998

(72)Inventor : SHIYOUHEI TAKESHI

TAKAISHI HIDEO

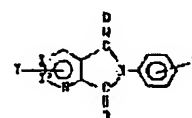
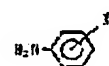
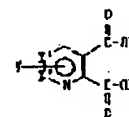
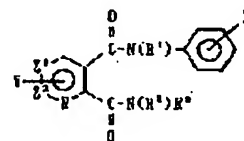
ODA YOSHIKI

MURAI MASAHIKO

(54) HETEROCYCLIC DIAMIDE DICARBOXYLATE DERIVATIVE, ITS INTERMEDIATE AND HERBICIDE**(57)Abstract:**

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a new compound useful as a herbicide having an excellent herbicidal activity, especially useful for weeding of *Panicumcrus* Galli, *Scirpus juncoides* Roxb, etc., in a paddy field.

SOLUTION: This compound is expressed by formula I (R1 is H or a 1-8C alkyl; R2 and R3 are each H, a 1-8C alkoxy or the like; X is H, nitro or the like; Y is H, a halogen or the like; Z1 and Z2 is different and respectively C or N) or its salts, e.g. 5-(3-chloro-2,6-diethylphenyl)aminocarbonyl-2-methyl-4-pyrimidine carboxylic acid n-propylamide. The compound is obtained by subjecting dicarboxylates of formula II (R is a 1-6C alkyl) to hydrolysis and cyclodehydration in turn, and reacting substituted anilines of formula III to the resultant acid anhydride. The resultant anilides are subjected to cyclodehydration to obtain a new intermediate of formula IV and the intermediate is reacted to amines of the formula: R3(R2)NH at preferably 0-1500° C for several min-48 hrs to obtain the objective compound.

**LEGAL STATUS**

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-7661

(P2000-7661A)

(43) 公開日 平成12年1月11日 (2000. 1. 11)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テラード (参考)
C 0 7 D 239/28		C 0 7 D 239/28	4 H 0 1 1
A 0 1 N 43/54		A 0 1 N 43/54	A
43/58		43/58	A
C 0 7 D 237/24		C 0 7 D 237/24	

審査請求 未請求 請求項の数 3 F D (全 35 頁)

(21) 出願番号 特願平10-192409

(22) 出願日 平成10年6月23日 (1998. 6. 23)

(71) 出願人 000232623

日本農薬株式会社

東京都中央区日本橋1丁目2番5号

(72) 発明者 勝平 健

大阪府河内長野市向野町756-4-301

(72) 発明者 高石 日出男

兵庫県西宮市小松南町1-15-4

(72) 発明者 小田 良樹

大阪府河内長野市本多町5-6-303

(74) 代理人 100068618

弁理士 萼 経夫 (外2名)

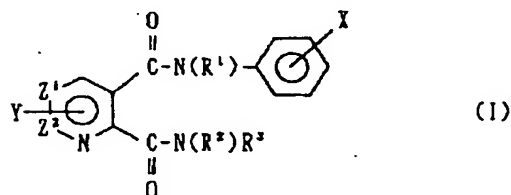
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体及びその中間体並びに除草剤

(57) 【要約】

【解決手段】 一般式 (I)

【化1】



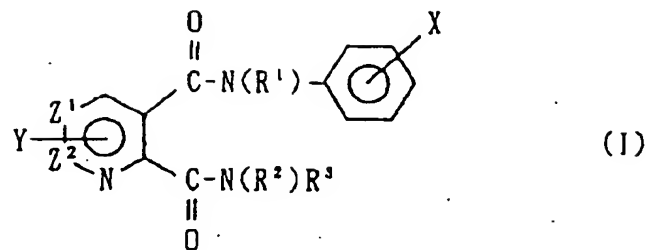
〔式中、 R^1 はH、 (C_{1-8}) アルキル、 R^2 及び R^3 はH、 $(ハロ)$ (C_{1-8}) アルキル、 (C_{1-8}) アルコキシ、
(置換) (C_{3-8}) シクロアルキル、(置換) フェニル
 (C_{1-8}) アルキル基、(置換) 5～6員複素環カルボニル等、 $R^2 + R^3$ は(置換) 5～6員複素環、X及びYはH、ハロゲン、ニトロ、シアノ、 $(ハロ)$ (C_{1-8}) アルキル、 (C_{3-8}) シクロアルキル、(置換) フェニル等、 Z^1 及び Z^2 は異なって、C又はN。〕で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類並びに除草剤。

【効果】 本発明の除草剤は水田、畑、樹園地、湿地等

に発生する1年生及び多年生雑草を除草するのに有用であり、特に水田におけるイヌビエ、ホタルイ等の雑草の防除に有用である。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一般式 (I)

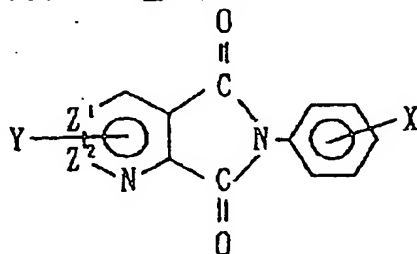


【式中、R¹ は水素原子又は (C₁₋₈) アルキル基を示す。R² 及び R³ は同一又は異なっても良く、水素原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、(C₃₋₈) シクロアルキル基、同一又は異なっても良い 1 以上のハロゲン原子を環上に有する (C₃₋₈) シクロアルキル基、(C₃₋₈) シクロアルキル (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルキルチオ (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシカルボニル (C₁₋₆) アルキル基、フェニル (C₁₋₆) アルキル基、同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子又は (C₁₋₈) アルキル基から選択される 1 以上の置換基を環上に有する置換フェニル (C₁₋₆) アルキル基、同一又は異なっても良く、水素原子又は (C₁₋₈) アルキル基により置換されたアミノ (C₁₋₆) アルキル基、フェニル (C₁₋₆) アルコキシ基、又は同一若しくは異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される 1 以上のヘテロ原子を有する 5～6 員複素環カルボニル基を示し、該複素環カルボニル基の環上の炭素原子又は窒素原子は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される 1 以上の置換基を有することもできる。又、R² 及び R³ は一緒になって、同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される 1 以上のヘテロ原子を有する 5 から 6 員複素環を示すこともでき、該複素環上の炭素原子又は窒素原子は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基又はハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基から選択される 1 以上の置換基を有することもできる。X は同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₃₋₈) シクロアルキル基、(C₃₋₈) シクロアルキル (C₁₋₆) アルキル基、同一又は異なっても良い 1 以上のハロゲン原子を環上に有する (C₃₋₈) シクロアルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基、(C₁₋₈) アルキルスルフィニル基、ハロ (C₁₋₈)

10 アルキルスルフィニル基、(C₁₋₈) アルキルスルホニル基、ハロ (C₁₋₈) アルキルスルホニル基、(C₁₋₈) アルコキシ (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルキルチオ (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基、(C₁₋₈) アルキルスルフィニル基、ハロ (C₁₋₈) アルキルスルフィニル基、(C₁₋₈) アルキルスルホニル基、ハロ (C₁₋₈) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される 1 以上の置換基を有する置換フェニル基、フェニル (C₁₋₆) アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基、(C₁₋₈) アルキルスルフィニル基、ハロ (C₁₋₈) アルキルスルフィニル基、(C₁₋₈) アルキルスルホニル基、ハロ (C₁₋₈) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される 1 以上の置換基を環上に有する置換フェニル (C₁₋₆) アルキル基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される 1 以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシ基、ハロ (C₁₋₈) アルコキシ基、(C₁₋₈) アルキルチオ基、ハロ (C₁₋₈) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される 1 以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、又は同一若しくは異なっても良く、水素原子、(C₁₋₈) アルキル基、シアノ (C₁₋₈) アルキル基、フェニル (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシカルボニル (C₁₋₆) アルキル基、(C₁₋₈) アルコキシカルボニル基、(C₁₋₈) アシル基、(C₁₋₈) アルキルスルホニル基又はハロ (C₁₋₈) アルキルスルホニル基により置換されたアミノ基から選択される 1～5 個の置換基を示す。Y は同一又は異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、(C₁₋₈) アルキル基、ハロ (C₁₋₈) アルキル基、(C₃₋₈) シクロアル

3

キル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、
 同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に
 有する (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ
 基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ
 基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルス
 ルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、
 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル
 スルホニル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル
 基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、
 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は
 は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル
 基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、
 ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、
 ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスル
 フィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8})
 アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルス
 ルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換
 基を有する置換フェニル基、フェノキシ基、同一又は異
 なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハ
 ロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ
 (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ
 (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される*



(III)

(式中、Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロ
 ゲン原子、ニトロ基、シアノ基、 (C_{1-8}) アルキル基、
 ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル基、
 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は
 異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する
 (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハ
 ロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハ
 ロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスル
 フィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、
 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル
 スルホニル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル
 基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、
 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は
 は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル
 基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、
 ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、
 ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスル
 フィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8})
 アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルス
 ルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換

* 1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチ
 オ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、
 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、
 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、
 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基
 又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する
 置換フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、水素原
 子、ヒドロキシル基、 (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アル
 コキシ基、シアノ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アル
 コキシカルボニル (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコ
 キシカルボニル基、 (C_{1-8}) アルコキシアミノカルボニ
 ル基、 (C_{1-8}) アシル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル
 基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル
 (C_{1-6}) アルキル基により置換されたアミノ基、 (C_{3-8})
 アルキレンイミノ基、又は同一若しくは異なっても良い
 (C_{1-8}) アルキル基により置換されたヒドラジノ基から
 選択される1~2個の置換基を示す。Z¹及びZ²は異
 なって、炭素原子又は窒素原子を示す。)で表される複
 素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類。

【請求項2】 一般式(III)

【化2】

基を有する置換フェニル基、フェニル (C_{1-6}) アルキル
 基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8})
 アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコ
 キシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキル
 チオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキ
 ルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル
 基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アル
 キルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上
 の置換基を環上に有する置換フェニル (C_{1-6}) アルキル
 基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン
 原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、
 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、
 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基
 又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する
 置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なつて
 も良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8})
 アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ
 (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ
 (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される
 1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、又は同一

若しくは異なっても良く、水素原子、 (C_{1-8}) アルキル基、シアノ (C_{1-8}) アルキル基、フェニル (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、 (C_{1-8}) アシル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基により置換されたアミノ基から選択される1~5個の置換基を示す。Yは同一又は異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基、フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、水素原子、ヒドロキシル基、 (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、シアノ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、 (C_{1-8}) ア*

*ルコキシアミノカルボニル基、 (C_{1-8}) アシル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル (C_{1-8}) アルキル基により置換されたアミノ基、 (C_{3-8}) アルキレンイミノ基、又は同一若しくは異なっても良い (C_{1-8}) アルキル基により置換されたヒドラジノ基から選択される1~2個の置換基を示す。Z¹ 及びZ² は異なって、炭素原子又は窒素原子を示す。) で表される複素環カルボン酸イミド類。

【請求項3】 請求項1記載の複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類を有効成分として含有することを特徴とする除草剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は新規な複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類及び該化合物を製造するための中間体化合物である複素環カルボン酸イミド類並びに除草剤に関するものであり、更に詳しくは新規なピリミジン-4, 5-ジカルボン酸ジアミド誘導体又はピリダジン-3, 4-ジカルボン酸ジアミド誘導体又はそれらの塩類に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 特開平6-2519号公報にはピラジンジカルボン酸ジアミド誘導体が除草剤として有用であることが記載され、特開平9-323974号公報にはピリジンジカルボン酸ジアミド誘導体が除草剤として有用であることが記載されている。

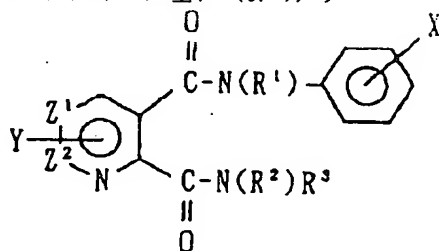
【0003】

【発明が解決しようとする課題】 本発明者等は新規な除草剤を開発すべく鋭意研究を重ねた結果、本発明の一般式(I) で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類、特にピリミジン-4, 5-ジカルボン酸ジアミド誘導体又はピリダジン-3, 4-ジカルボン酸ジアミド誘導体又はそれらの塩類が文献未記載の新規化合物であり、優れた除草活性を有し、更に該化合物を製造するための中間体化合物である複素環カルボン酸イミド類、特にピリミジンカルボン酸イミド類又はピリダジンカルボン酸イミド類が文献未記載の新規化合物であることを見出し、本発明を完成させたものである。

【0004】

【課題を解決するための手段】 本発明は一般式(I)

【化3】



(I)

(式中、R¹ は水素原子又は (C_{1-8}) アルキル基を示す。R² 及びR³ は同一又は異なっても良く、水素原

7

子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{3-8}) シクロアルキル基、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル (C_{1-6}) アルキル基、フェニル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子又は (C_{1-8}) アルキル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良く、水素原子又は (C_{1-8}) アルキル基により置換されたアミノ (C_{1-6}) アルキル基、フェニル (C_{1-6}) アルコキシ基、又は同一若しくは異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1以上のヘテロ原子を有する5〜6員複素環カルボニル基を示し、該複素環カルボニル基の環上の炭素原子又は窒素原子は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有することもできる。

【0005】又、 R^2 及び R^3 は一緒になって、同一又は異なっても良く、酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1以上のヘテロ原子を有する5から6員複素環を示すこともでき、該複素環上の炭素原子又は窒素原子は同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基又はハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基から選択される1以上の置換基を有することもできる。

【0006】Xは同一又は異なっても良く、水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8})

8

アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基、フェニル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を環上に有する置換フェニル (C_{1-6}) アルキル基、

【0007】フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、又は同一若しくは異なっても良く、水素原子、 (C_{1-8}) アルキル基、シアノ (C_{1-8}) アルキル基、フェニル (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、 (C_{1-8}) アシル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基により置換されたアミノ基から選択される1〜5個の置換基を示す。

【0008】Yは同一又は異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、ニトロ基、シアノ基、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{3-8}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する (C_{3-8}) シクロアルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、 (C_{1-8}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基、 (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基、

10

20

30

40

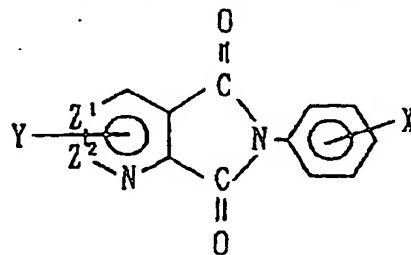
50

【0009】フェノキシ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェノキシ基、フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-8}) アルキル基、ハロ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-8}) アルコキシ基、 (C_{1-8}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-8}) アルキルチオ基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニルチオ基、同一又は異なっても良く、水素原子、ヒドロキシル基、 (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシ基、シアノ (C_{1-8}) アルキル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル (C_{1-8}) アル*

*キル基、 (C_{1-8}) アルコキシカルボニル基、 (C_{1-8}) アルコキシアミノカルボニル基、 (C_{1-8}) アシル基、 (C_{1-8}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-8}) アルキルスルホニル基又はフェニル (C_{1-8}) アルキル基により置換されたアミノ基、 (C_{3-5}) アルキレンイミノ基、又は同一若しくは異なっても良い (C_{1-8}) アルキル基により置換されたヒドラジノ基から選択される1~2個の置換基を示す。 Z^1 及び Z^2 は異なって、炭素原子又は窒素原子を示す。)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類及び該化合物を有効成分とする除草剤並びに該化合物を製造するための中間体化合物である一般式(III)

【0010】

【化4】



(III)

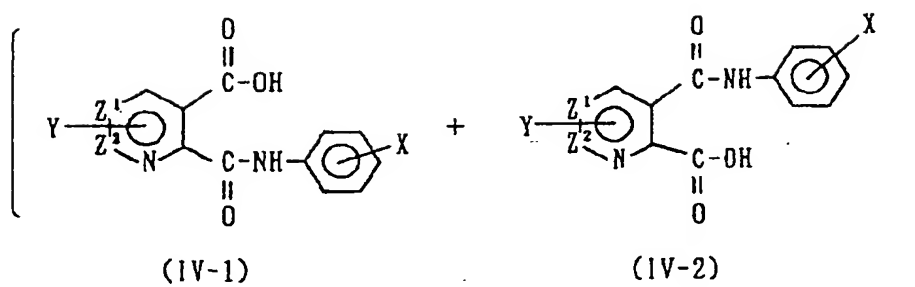
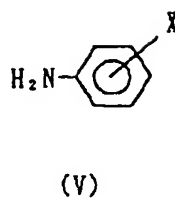
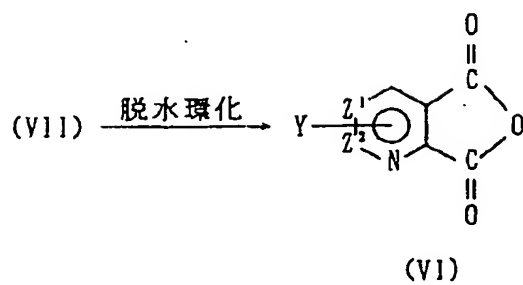
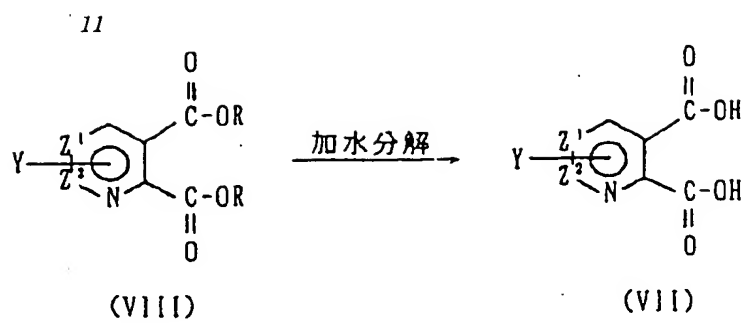
(式中、X、Y、 Z^1 及び Z^2 は前記に同じ。)で表される複素環カルボン酸イミド類である。

【0011】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体又はその塩類は、例えば以下に

図示する製造方法により製造することができる。

製造方法A.

【化5】

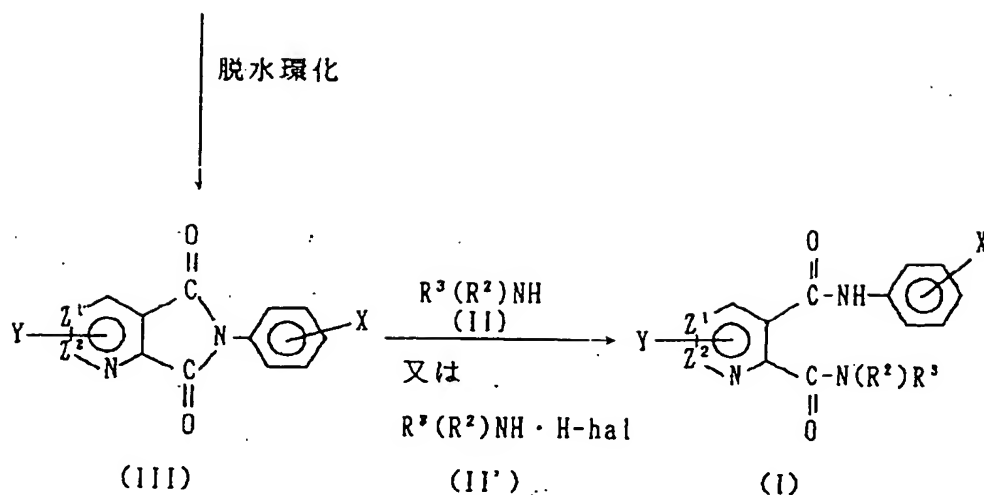


【化6】

13

(IV-1) + (IV-2)

14



(式中、 R^1 、 R^2 、 R^3 、 X 、 Y 、 Z^1 及び Z^2 は前記に同じくし、 hal はハロゲン原子を示し、 R は(C₁₋₆)アルキル基を示す。)

【0012】一般式(VIII)で表されるジカルボン酸エステル類を酸又はアルカリの存在下、加水分解して一般式(VII)で表されるジカルボン酸類とし、該ジカルボン酸類を脱水剤の存在下、脱水環化することにより一般式(VI)で表される酸無水物類とした後、該酸無水物類を不活性溶媒の存在下又は不存在下、一般式(V)で表される置換アニリン類と反応させることにより一般式(IV-1)及び(IV-2)で表されるアニリド類とし、これらを単離又は単離せずして不活性溶媒の存在下又は不存在下に脱水剤と反応を行い、一般式(III)で表される複素環カルボン酸イミド類とし、該イミドを単離又は単離せずして不活性溶媒の存在下又は不存在下に一般式(II)又は(II')で表されるアミン類又はその塩類と反応させることにより、一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を製造することができる。

【0013】(A-1)、一般式(VIII)→一般式(VII)

本反応で使用する不活性溶媒としては、例えば水、水溶性溶媒であるメタノール、エタノール、プロパノール等のアルコール類及び水と水溶性溶媒との混合溶媒を使用することができる。加水分解に使用する塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等のアルカリ金属原子の水酸化物を使用することができ、その使用量は一般式(VIII)で表されるジエステル類に対して0.5～1.0当量の範囲から適宜選択して使用すれば良い。反応温度は室温乃至使用する不活性溶媒の還流下で行うことができ、反応時間は反応規模、反応温度等により一定しないが、数分乃至48時間の範囲から適宜選択して行えば良い。反応終了後、目的物を含む反応系から常法により目的物を単離し、必要に応じて再結晶法、蒸留法、カラムクロマトグラフィー法等で精製することにより目

的物を製造することができる。又、本反応終了後に目的物を単離せずに次の反応に供することもできる。

20 【0014】(A-2)、一般式(VII)→一般式(VI)

本反応で使用する不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばジクロロメタン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン、クロロベンゼン等の芳香族炭化水素類、メチルセロソルブ、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類、酢酸、トリフルオロ酢酸等の有機酸類を使用することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は混合して使用することもできる。又、脱水剤を過剰に使用することにより、不活性溶媒の代わりとすることもできる。脱水剤としては、例えば無水酢酸、トリフルオロ酢酸無水物等の脱水剤を使用することができ、これらの脱水剤の使用量は、一般式(VII)で表される化合物に対して等モル～過剰モルの範囲から適宜選択して使用すれば良く、好ましくは等モル使用するのが良い。

【0015】反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域から適宜選択すれば良く、不活性溶媒を使用しない場合は使用する脱水剤の沸点域で行えば良い。反応時間は、反応温度、反応規模等により一定しないが、数分～48時間の範囲で行えば良い。反応終了後、目的物を含む反応系から常法により目的物を単離し、必要に応じて再結晶法、蒸留法、カラムクロマトグラフィー法等で精製することにより目的物を製造することができる。本反応は J. Org. Chem. Soc., 52, 129 (1987), J. Am. Chem. Soc., 51, 1865 (1929), 同63, 1542 (1941) 等に記載の方法により製造することができる。本反応終了後に目的物を単離せずに次の反応に供することもできる。

【0016】

(A-3). 一般式(VI)→一般式(IV-1)+一般式(IV-2)

本反応で使用できる不活性溶媒としては、本反応の進行を著しく阻害しないものであれば良く、例えばベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン等のハロゲン化炭化水素類、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類、酢酸エチル等のエステル類、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等のアミド類、酢酸等の酸類、ジメチルスルホキシド、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジン、水等の不活性溶媒を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で又は2種以上混合して使用することができる。

【0017】本反応は等モル反応であるので、各反応剤を等モル使用すれば良いが、いずれかの反応剤を過剰に使用することができる。本反応は必要に応じて脱水条件下で反応を行うことができる。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域から適宜選択すれば良く、不活性溶媒を使用しない場合は使用する脱水剤の沸点域で行えば良い。反応時間は、反応温度、反応規模等により一定しないが、数分～48時間の範囲で行えば良い。反応終了後、目的物を含む反応系から常法により目的物を単離し、必要に応じて再結晶法、蒸留法、カラムクロマトグラフィー法等で精製することにより目的物を製造することができる。本反応終了後に目的物を単離せずに次の反応に供することもできる。

【0018】(A-4). 一般式(IV-1)+一般式(IV-2)→一般式(III)

本反応は(A-2)と同様にすることにより目的物を製造することができる。又、本反応終了後に目的物を単離せずに次の反応に供することもできる。

(A-5). 一般式(III)→一般式(I)

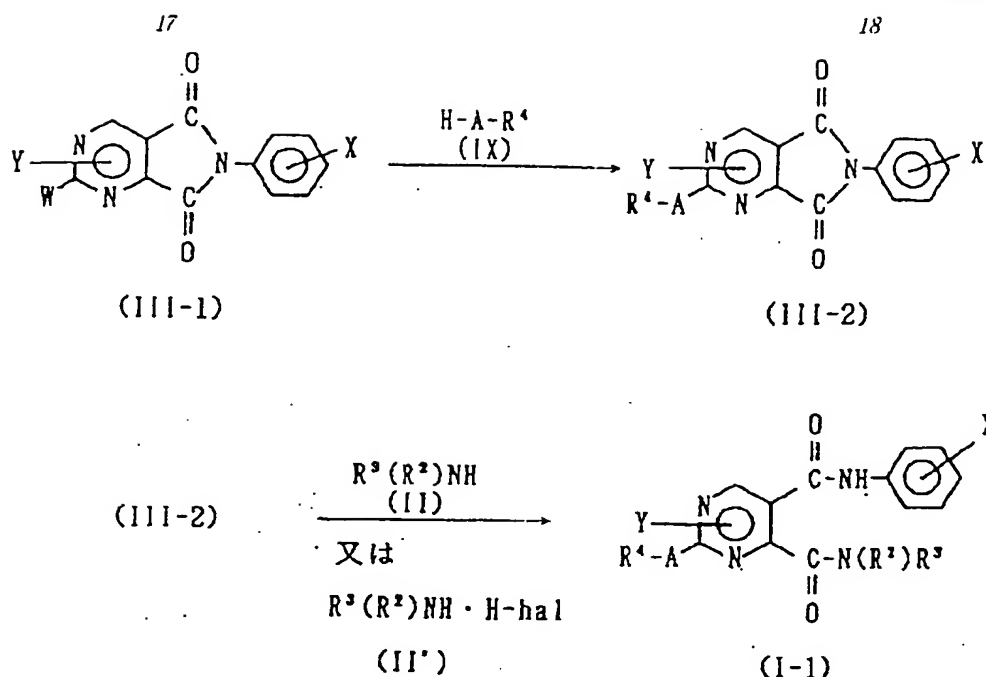
本反応で使用できる不活性溶媒としては、例えば(A-

4)で例示の不活性溶媒の他に、ピリジル類も使用することができる。本反応は等モル反応であるので、一般式(II)で表されるアミン類又は一般式(II')で表されるアミン塩類を、一般式(III)で表されるイミド類に対して等モル使用すれば良いが、過剰に使用することもできる。本反応で一般式(II')で表されるアミンの塩類を使用する場合、遊離のアミンを反応系で発生させるために塩基を必要とし、塩基としては無機塩基又は有機塩基を使用することができ、無機塩基としては、例えば水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等のアルカリ金属原子の水酸化物、炭酸塩等を、有機塩基としては、例えばトリエチルアミン、ピリジン、4-ジメチルアミノピリジン、1, 8-ジアザビシクロ[5, 4, 0]-7-ウンデセン等を例示することができ、これらの塩基の使用量は一般式(II')で表されるアミンの塩類に対して等モル～過剰モルの範囲から適宜選択して使用すれば良い。

【0019】反応温度は-10℃～使用する不活性溶媒の沸点域から適宜選択すれば良く、好ましくは0℃～150℃の範囲で行えば良い。反応時間は、反応温度、反応規模等により一定しないが、数分乃至48時間の範囲で行えば良い。反応終了後、目的物を含む反応系から常法により目的物を単離し、必要に応じて再結晶法、蒸留法、カラムクロマトグラフィー法等で精製することにより目的物を製造することができる。本反応の原料化合物である一般式(VII)で表される化合物は公知の方法(例えば、Chem. Pharm. Bull., 20(7), 1913(1972)、J. Heterocyclic Chem., 27, 579(1990)、Tetrahedron, 53(42), 1497(1997))に従って製造することができる。

【0020】製造方法B.

【化7】



【0021】〔式中、 R^2 、 R^3 、 X 、 Y 及びは hal は前記に同じくし、 A は O 、 S 、 NR^5 （式中、 R^5 は後記に示す。）を表し、 R^4 及び R^5 は同一又は異なっても良く、水素原子、ヒドロキシル基、 (C_{1-6}) アルキル基、ハロ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{3-6}) シクロアルキル基、 (C_{3-6}) シクロアルキル (C_{1-6}) アルキル基、同一又は異なっても良い1以上のハロゲン原子を環上に有する (C_{3-6}) シクロアルキル基、 (C_{1-6}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-6}) アルコキシ基、 (C_{1-6}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-6}) アルキルチオ基、 (C_{1-6}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-6}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-6}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-6}) アルキルスルホニル基、 (C_{1-6}) アルコキシ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-6}) アルキルチオ (C_{1-6}) アルキル基、シアノ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-6}) アルコキシカルボニル (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-6}) アルコキシカルボニル基、 (C_{1-6}) アルコキシアミノカルボニル基、 (C_{1-6}) アシル基、フェニル基、同一又は異なっても良く、ハロゲン原子、 (C_{1-6}) アルキル基、ハロ (C_{1-6}) アルキル基、 (C_{1-6}) アルコキシ基、ハロ (C_{1-6}) アルコキシ基、 (C_{1-6}) アルキルチオ基、ハロ (C_{1-6}) アルキルチオ基、 (C_{1-6}) アルキルスルフィニル基、ハロ (C_{1-6}) アルキルスルフィニル基、 (C_{1-6}) アルキルスルホニル基、ハロ (C_{1-6}) アルキルスルホニル基又はフェニル基から選択される1以上の置換基を有する置換フェニル基又は同一若しくは異なっても良い (C_{1-6}) アルキル基により置換されたアミノ基を示す。又、 A が NR^5 の場合、 R^4 及び R^5 は一緒になって、同一又は異なっても良い酸素原子、硫黄原子又は窒素原子から選択される1以上のヘテロ原子を有する5～6員環ヘテロ環を示すことができる。 W はハロゲン原子、アルキルスルフィニル基、アルキルスルホニル基、アリアルスルフィニル基、

アリアルスルホニル基等の脱離基を示す。〕

【0022】一般式(III-1)で表される複素環カルボン酸イミド類を塩基の存在下又は不存在下に一般式(IX)で表される求核試薬反応させ、一般式(III-2)で表される複素環カルボン酸イミド類とした後、該イミド類を単離又は単離せずして不活性溶媒の存在下又は不存在下に一般式(II)又は一般式(II')で表されるアミン類又はその塩類と反応させることにより、一般式(I-1)で表されるピリジン-4, 5-ジカルボン酸ジアミド誘導体を製造することができる。

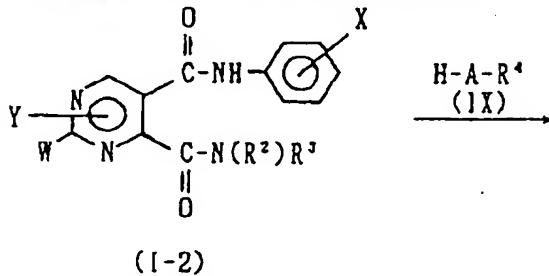
(B-1). 一般式(III-1) → 一般式(III-2)

本反応で使用する不活性溶媒としては、例えば塩化メチレン、クロロホルム、四塩化炭素等のハロゲン化炭化水素類、ベンゼン、トルエン、キシレン等の芳香族炭化水素類、アセトニトリル、ベンゾニトリル等のニトリル類、メチルセロソルブ、ジエチルエーテル、ジオキサン、テトラヒドロフラン等の鎖状又は環状エーテル類、スルホラン、ジメチルスルホキシド、ジメチルスルホン、水等を例示することができ、これらの不活性溶媒は単独で、又は2種以上混合して使用することができる。又、水及び有機溶媒の2層系混合溶媒を使用する場合、塩基とともに例えば、トリメチルベンジルアンモニウムクロリド等の相間移動触媒を使用することもできる。

【0023】本発明で使用する塩基としては無機塩基又は有機塩基を使用することができ、無機塩基としては、例えばナトリウム、カリウム、マグネシウム、カルシウム等のアルカリ金属又はアルカリ土類金属原子の水酸化物、炭酸塩又はアルコラート等の無機塩基、有機塩基としては、例えばトリエチルアミン、ピリジン等の有機塩基を使用することができ、その使用量は一般式(III-1)で表される複素環カルボン酸イミド類に対して等モル～過剰モルの範囲から選択して使用すれば良い。本反応は

19

等モル反応であるので一般式(III-1)で表される複素環カルボン酸イミド類及び一般式(IX)で表される求核試薬を等モル使用すれば良く、いずれかを過剰に使用することもできる。反応温度は室温～使用する不活性溶媒の沸点域から選択すれば良く、反応時間は、反応温度、反応規模等により一定しないが、数分～48時間の範囲である。反応終了後、反応系より目的物を常法により単離し、必要に応じて精製等を行うことにより目的物を製造*



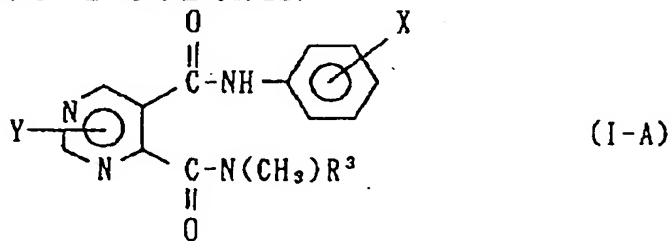
〔式中、 R^2 、 R^3 、 R^4 、 A 、 W 、 X 、及び Y は前記に同じ。〕

一般式(I-2)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を塩基の存在下又は不存在下に一般式(IX)で表される求核試薬と反応させ、一般式(I-1)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を製造することができる。本反応は(B-1)と同様にすることにより目的物を製※

※造することができる。

【0025】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体の代表例を第1表及び第2表に例示するが、本発明はこれらに限定されるものではない。一般式(I-A)

【化9】



【0026】

★ ★【表1】

第1表

No	R_2	X	Y	物性(m. p.)
1	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	169-171 °C
2	C ₂ H ₅	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
3	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
4	i-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
5	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	

【0027】

【表2】

第 1 表 (続き)

No	R ₁	X	Y	物性(m. p.)
6	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	165-167 °C
7	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
8	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
9	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
10	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
11	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	161-163 °C
12	i-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
13	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
14	t-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
15	n-C ₆ H ₁₃	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CH ₃	
16	CH ₃	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	161-163 °C
17	C ₂ H ₅	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
18	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
19	i-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
20	c-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
21	n-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
22	s-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
23	i-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
24	t-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
25	n-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
26	i-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	162-164 °C
27	c-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	

【 0 0 2 8 】

【 表 3 】

第1表 (続き)

No	R ₄	X	Y	物性(m. p.)
28	neo-C ₆ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
29	t-C ₆ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
30	n-C ₆ H ₁₃	2-CH ₃ -3-Cl	2-CH ₃	
31	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
32	i-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
33	c-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
34	n-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
35	s-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
36	i-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
37	t-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
38	n-C ₆ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
39	neo-C ₆ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
40	i-C ₆ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
41	c-C ₆ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-C ₂ H ₅	
42	t-C ₆ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
43	n-C ₆ H ₁₃	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
44	C ₂ H ₅	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
45	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-OCH ₃	147-149 °C
46	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	147-149 °C
47	i-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
48	c-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
49	n-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	

【0029】

【表4】

25
 第 1 表 (続き)

No	R ₃	X	Y	物性(m. p.)
50	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	188-190 °C 141-143 °C
51	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
52	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
53	n-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
54	neo-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
55	i-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
56	c-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
57	t-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
58	n-C ₈ H ₁₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OCH ₃	
59	n-C ₈ H ₁₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-SCH ₃	
60	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
61	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
62	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
63	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
64	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
65	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
66	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
67	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
68	n-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
69	neo-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
70	i-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	
71	c-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SCH ₃	

【 0 0 3 0 】

【 表 5 】

第 1 表 (続き)

No	R ₉	X	Y	物性(n. p.)
72	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	168-170 °C
73	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
74	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
75	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
76	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
77	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
78	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
79	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
80	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
81	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
82	i-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
83	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SOCH ₃	
84	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	175-177 °C
85	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	198-200 °C
86	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
87	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
88	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
89	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
90	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
91	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
92	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
93	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	

[0 0 3 1]

【表 6】

第 1 表 (続き)

No	R ₃	X	Y	物性(m. p.)
94	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	186-188 °C 160-162 °C
95	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SO ₂ CH ₃	
96	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
97	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
98	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
99	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
100	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
101	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
102	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
103	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
104	n-C ₆ H ₁₃	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	126-128 °C 154-156 °C 215-220 °C 165-170 °C
105	neo-C ₆ H ₁₃	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
106	i-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
107	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NH ₂	
108	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
109	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
110	CH ₃	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃ HCl	
111	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃ HCl	
112	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
113	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
114	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
115	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	

【 0 0 3 2 】

【 表 7 】

第 1 表 (続き)

No	R ₁	X	Y	物性(n. p.)
116	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
117	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
118	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
119	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
120	i-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
121	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
122	t-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
123	n-C ₆ H ₁₃	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₃	
124	C ₆ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	160-162 °C
125	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	145-147 °C
126	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂ ·HCl	160-163 °C
127	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂ ·HCl	125-130 °C
128	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	161-163 °C
129	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
130	i-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -4-C ₂ F ₅	2-N(CH ₃) ₂	155-157 °C
131	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
132	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
133	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
134	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	202-204 °C
135	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
136	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
137	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	

【 0 0 3 3 】

【表 8】

第 1 表 (続き)

No	R ₁	X	Y	物性(m. p.)
138	i-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	171-173 °C
139	c-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
140	t-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
141	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(CH ₃) ₂	
142	C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	189-191 °C
143	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	168-170 °C
144	i-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
145	c-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
146	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
147	s-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
148	i-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
149	t-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
150	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
151	neo-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
152	i-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
153	c-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅	
154	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHOC ₂ H ₅	
155	C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	123-125 °C
156	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	144-146 °C
157	i-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
158	c-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
159	n-C ₈ H ₁₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	

【0034】

【表 9】

35
 第 1 表 (続き)

No	R ₁	X	Y	物性 (n. p.)
160	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	182-184 °C
161	l-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
162	l-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
163	n-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
164	neo-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
165	l-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
166	c-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(OCH ₃)CH ₃	
167	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
168	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
169	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
170	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
171	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
172	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
173	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
174	n-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	181-183 °C
175	neo-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
178	l-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
179	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -n	
180	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -l	
181	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -i	
182	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -l	
183	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -l	

【 0 0 3 5 】

【 表 1 0 】

37
 第 1 表 (続き)

38

No	R ₆	X	Y	物性(m. p.)
184	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
185	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
186	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
187	n-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
188	neo-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
189	i-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
190	c-C ₅ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₂ H ₅ -1	
191	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ Ph	
192	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ Ph	
193	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ CO ₂ CH ₃	184-185 °C
194	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ CO ₂ CH ₃	173-175 °C
195	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ CN	102-104 °C
196	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ Ph	206-208 °C
197	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ Ph	192-194 °C
198	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHCH ₂ Ph	61-71 °C
199	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHPh	
200	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₄ H ₉ -n	182-184 °C
201	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-NHC ₄ H ₉ -n	160-162 °C
202	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(C ₂ H ₅)CH ₃	113-115 °C
203	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(C ₂ H ₅)CH ₃	132-134 °C
204	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(C ₂ H ₅) ₂	157-159 °C
205	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(C ₂ H ₅) ₂	162-164 °C

【 0 0 3 6 】

【 表 1 1 】

第 1 表 (続き)

No	R ₄	X	Y	物性(m. p.)
206	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(-C ₂ H ₅ -)	188-190 °C
207	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(-C ₂ H ₅ -)HCl	173-178 °C
208	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-N(-C ₂ H ₅ -)	158-160 °C
209	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2-CN	219-221 °C
210	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	233-235 °C
211	i-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
212	c-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
213	n-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
214	s-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
215	i-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
216	t-C ₄ H ₉	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
217	n-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
218	neo-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
219	i-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
220	c-C ₆ H ₁₁	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-CN	
221	C ₂ H ₅	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-Ph	214-216 °C
222	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-Ph	172-174 °C
223	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -4-C ₂ F ₅	2-Ph	171-173 °C
224	i-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -4-C ₂ F ₅	2-Ph	175-177 °C
225	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-SPb	
226	n-C ₃ H ₇	2, 6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2-OPb	
227	C ₂ H ₅	2-CH ₃ -3-Cl	2, 6-(CH ₃) ₂	

【 0 0 3 7 】

【 表 1 2 】

41
 第1表 (続き)

42

No	R ₃	X	Y	物性(m. p.)
228	n-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	221-223 °C
229	i-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
230	c-C ₃ H ₇	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
231	n-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
232	s-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
233	i-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
234	t-C ₄ H ₉	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
235	n-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
236	i-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
237	c-C ₅ H ₁₁	2-CH ₃ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
238	C ₆ H ₅	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	264-266 °C
239	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
240	i-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
241	c-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
242	n-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
243	s-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
244	i-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
245	t-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
246	n-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
247	neo-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
248	i-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	
249	c-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	

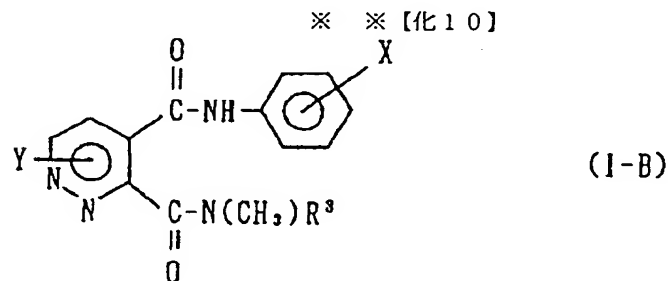
【0038】

* * 【表13】

第1表 (続き)

No	R ₃	X	Y	物性(m. p.)
250	t-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	2,6-(CH ₃) ₂	

【0039】一般式(I-B)



【0040】

【表14】

第2表

No	R ₁	X	Y	物性(m. p.)
251	C ₂ H ₅	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	142-144°C
252	n-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
253	i-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
254	c-C ₃ H ₇	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
255	n-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	

【0041】

* * 【表15】

第2表 (続き)

No	R ₁	X	Y	物性(m. p.)
256	s-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	127-129°C
257	i-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
258	t-C ₄ H ₉	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
259	n-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
260	neo-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
261	i-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	148-150°C
262	c-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
263	t-C ₅ H ₁₁	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	
264	n-C ₆ H ₁₃	2,6-(C ₂ H ₅) ₂ -3-Cl	H	

第1表及び第2表中、Phはフェニル基を、c-は脂環式炭化水素基を示す。

【0042】

【実施例】以下に本発明の代表的な実施例、処方例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。

実施例1. (1-1). N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メトキシカルボニルアミノ-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミドの製造. N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メタンスルホニル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 1.0g (2.5mmol) をジオキサン20mlに溶解し、該溶液にグリシンメチルエステル塩酸塩 280mg (2.5mmol) 及びトリエチルアミン 630mg (6.2mmol) を0℃で加えて1時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 600mg を得た。

収率 60%

¹H NMR [TMS/CDCl₃, δ 値(ppm)]

1.07(3H, t, J=7.5Hz), 1.12(3H, t, J=7.5Hz), 2.38(2H, q, J=7.5Hz), 2.56(2H, q, J=7.5Hz), 3.79(3H, s), 4.45(2H, 50

d, J=6.0Hz), 7.18(1H, d, J=8.4Hz), 7.46(1H, d, J=8.4Hz), 7.50(1H, bt, J=6.0Hz), 8.92(1H, s).

【0043】(1-2). N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-N', N'-ジメチルヒドラジノ-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミドの製造. N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メタンスルホニル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 1.0g (2.5mmol) をジオキサン20mlに溶解し、該溶液にN, N'-ジメチルヒドラジン 152mg (2.5mmol) を0℃で加えて1時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 420mg を得た。

収率 45%

¹H NMR [TMS/CDCl₃, δ 値(ppm)]

1.05(3H, t, J=7.5Hz), 1.11(3H, t, J=7.5Hz), 2.37(2H, q, J=7.5Hz), 2.55(2H, q, J=7.5Hz), 2.74(6H, s), 7.05(1H, bs), 7.17(1H, d, J=8.4Hz), 7.44(1H, d, J=8.4Hz), 9.04(1H, bs).

【0044】(1-3). N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチルアミノ-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミドの製造. N-(3-クロロ-

45

2, 6-ジエチルフェニル)-2-メタンスルホニル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 1.0 g (2.5 mmol) をジオキサン 20 ml に溶解し、該溶液に 40% メチルアミン水溶液 1.94 mg (2.5 mmol) を 0℃ で加えて 1 時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 630 mg を得た。

収率 73%

¹H NMR [TMS/CDCl₃, δ 値 (ppm)]

1.07 (3H, t, J=7.5 Hz), 1.13 (3H, t, J=7.5 Hz), 2.39 (2H, q, J=7.5 Hz), 2.57 (2H, q, J=7.5 Hz), 3.21 (3H, d, J=5.1 Hz), 7.05 (1H, bq, J=5.1 Hz), 7.18 (1H, d, J=8.1 Hz), 7.45 (1H, d, J=8.1 Hz), 8.94 (1H, s).

【0045】実施例 2

(2-1). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メチル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造 (化合物 No 3)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 800 mg (2.4 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に n-プロピルアミン 150 mg (2.5 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 840 mg を得た。

物性 m. p. 169-171℃ 収率 90%

【0046】(2-2). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メチル-4-ピリミジンカルボン酸 i-ブチルアミドの製造 (化合物 No 8)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 800 mg (2.4 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に i-ブチルアミン 180 mg (2.5 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 820 mg を得た。

物性 m. p. 165-167℃ 収率 85%

【0047】(2-3). 5-(3-クロロ-2-メチルフェニル)アミノカルボニル-2-メチル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造 (化合物 No 18)。

46

N-(3-クロロ-2-メチルフェニル)-2-メチル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 850 mg (3.0 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に n-プロピルアミン 180 mg (3.1 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 840 mg を得た。

物性 m. p. 161-163℃ 収率 81%

【0048】(2-4). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メチルチオ-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造 (化合物 No 61)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチルチオ-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 800 mg (2.2 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に n-プロピルアミン 140 mg (2.4 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 810 mg を得た。

物性 m. p. 141-143℃ 収率 88%

【0049】(2-5). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-ジメチルアミノ-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造 (化合物 No 125)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-ジメチルアミノ-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 800 mg (2.2 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に n-プロピルアミン 140 mg (2.4 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物 790 mg を得た。

物性 m. p. 145-147℃ 収率 86%

【0050】(2-6). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2, 6-ジメチル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造 (化合物 No 239)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2, 6-ジメチル-4, 5-ピリミジンジカルボキシイミド 700 mg (2.0 mmol) をテトラヒドロフラン 10 ml に溶解し、該溶液に n-プロピルアミン 130 mg (2.2 mmol) を加えて 12 時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結

47

晶として目的物680mgを得た。

物性 m. p. 264-266℃ 収率 84%

【0051】(2-7). 4-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-3-ピリダジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 252)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-3, 4-ピリダジンジカルボキシミド820mg (2. 6mmol) をテトラヒドロフラン10mlに溶解し、該溶液にn-プロピルアミン160mg (2. 7mmol) を加えて12時間反応を行った。反応終了後、反応液を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物780mgを得た。

物性 m. p. 142-144℃ 収率 80%

【0052】実施例3。

(3-1). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メチルスルフィニル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 73)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチルチオ-4, 5-ピリミジンジカルボン酸 n-プロピルアミド480mg (1. 1mmol) をクロロホルム10mlに溶解し、該溶液にm-クロロ過安息香酸200mg (1. 1mmol) を0℃で加えた後、室温で6時間反応を行った。反応終了後、反応液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物440mgを得た。

物性 m. p. 168-170℃ 収率 88%

【0053】(3-2). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メタンスルホニル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 85)。

N-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)-2-メチルチオ-4, 5-ピリミジンジカルボン酸 n-プロピルアミド480mg (1. 1mmol) をクロロホルム10mlに溶解し、該溶液にm-クロロ過安息香酸400mg (2. 2mmol) を0℃で加えた後、室温で6時間反応を行った。反応終了後、反応液を飽和炭酸水素ナトリウム水溶液、飽和食塩水の順に洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物460mgを得た。

物性 m. p. 198-200℃ 収率 93%

【0054】実施例4。

48

(4-1). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メトキシ-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 45)。

5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メタンスルホニル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミド500mg (1. 1mmol) をジメチルホルムアミド10mlに溶解し、該溶液にソディウムメトキシドメタノール溶液(28%) 260mg (1. 3mmol) を0℃で加えて、12時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物380mgを得た。

物性 m. p. 147-149℃ 収率 85%

【0055】(4-2). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-シアノ-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 210)。

5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メタンスルホニル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミド600mg (1. 3mmol) をジメチルスルホキシド10mlに溶解し、該溶液にシアン化カリウム65mg (1. 3mmol) を室温で加えて、8時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物390mgを得た。

物性 m. p. 233-235℃ 収率 75%

【0056】(4-3). 5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-アミノ-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミドの製造(化合物No 97)。

5-(3-クロロ-2, 6-ジエチルフェニル)アミノカルボニル-2-メタンスルホニル-4-ピリミジンカルボン酸 n-プロピルアミド600mg (1. 3mmol) をジオキサン10mlに溶解し、該溶液に28% アンモニア水1ml (16. 5mmol) を室温で加えて、8時間反応を行った。反応終了後、水を加えて酢酸エチルで抽出した。有機層を飽和食塩水で洗浄し、無水硫酸マグネシウムで乾燥した。溶媒を減圧下に留去し、得られた残渣を酢酸エチル/n-ヘキサンを溶離剤とするシリカゲルカラムクロマトグラフィーで精製することにより、白色結晶として目的物380mgを得た。

50 物性 m. p. 160-162℃ 収率 75%

【0057】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を有効成分として含有する除草剤は、例えばイヌビエ（イネ科1年生、水田の害草）、タマガヤツリ（カヤツリグサ科1年生草、水田の害草）、マツバイ（カヤツリグサ科多年生草、湿地、水路、水田に発生、水田の多年生害草）、ウリカワ（オモダカ科、水田、湿地、溝に発生する多年生害草）、ホタルイ（カヤツリグサ科多年生草、水田、湿地、溝に発生）、スズメノテッポウ（イネ科雑草、水田、低湿地に発生）、エンバク（イネ科越年草、平地、荒地、畑地に発生）、ヨモギ（キク科多年生草、山野、畑地に発生）、メヒシバ（イネ科1年生草、畑、樹園地の強害草）、キシギシ（タデ科多年生草、畑地、道端に発生）、コゴメガヤツリ（カヤツリグサ科1年生草、アオビユ（ヒユ科1年生草、空き地、道端、畑地に発生）、オナモミ（キク科1年生草、畑地の害草）、イチビ（アオイ科1年生草、畑地の害草）、ヨウシュチョウセンアサガオ（ヒルガオ科1年生草、畑地の害草）、オオイヌノフグリ（ゴマノハグサ科1～2年生草、畑地の害草）、ヤエムグラ（アカネ科1年生草、畑地、樹園地の害草）等の水田、畑、樹園地、湿地等に発生する1年生及び多年生雑草を除草するのに有用であり、特に水田におけるイヌビエ、ホタルイ等の雑草の防除に有用である。

【0058】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を有効成分として含有する除草剤は出芽前及び出芽後にある雑草に対して優れた除草効果を示すことから、有用植物の植え付け予定地に予め処理するとか、有用植物の植え付け後（有用植物が樹園のごとく既に定植されている場合を含む）雑草の発生始期から生育期に処理することにより本発明除草剤の有する特徴ある生理活性を効果的に発現させることができる。しかし本発明の除草剤はこのような態様においてのみ使用されねばならないというものではなく、例えば本発明除草剤は水田用除草剤として使用することができるだけでなく、一般雑草の除草剤としても使用することができ、例えば刈り取り跡、休耕田畑、畦畔、農道、水路、牧草造成地、墓地、公園、道路、運動場、建物の周辺の空き地、開墾地、線路端、森林等の一般雑草の駆除のために使用することもできる。この場合、雑草の発生始期までに処理するのが経済的にも最も効果的であるが、必ずしもこれに限定されず、生育期にある雑草をも防除することが可能である。

【0059】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を除草剤として使用する場合、農薬製剤上の常法に従い、使用上都合の良い形状に製剤して使用するのが一般的である。即ち、本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体は、これらを適当な不活性担体に、又は必要に応じて補助剤と一緒に、適当な割合に配合して溶解、分離、懸濁、混

合、含浸、吸着若しくは付着させ、適宜の剤形、例えば懸濁剤、乳剤、液剤、水和剤、粒剤、粉剤、錠剤等に製剤して使用すれば良い。

【0060】本発明で使用できる不活性担体としては固体又は液体の何れであっても良く、固体の担体になりうる材料としては、例えばダイズ粉、穀物粉、木粉、樹皮粉、鋸粉、タバコ茎粉、クルミ殻粉、ふすま、繊維素粉末、植物エキス抽出後の残渣、粉碎合成樹脂等の合成重合体、粘土類（例えばカオリン、ベントナイト、酸性白土等）、タルク類（例えばタルク、ピロフィライト等）、シリカ類（例えば珪藻土、珪砂、雲母、ホワイターカーボン〔含水微粉珪素、含水珪酸ともいわれる合成高分散珪酸で、製品により珪酸カルシウムを主成分として含むものもある。〕）、活性炭、イオウ粉末、軽石、焼成珪藻土、レンガ粉砕物、フライアッシュ、砂、炭酸カルシウム、燐酸カルシウム等の無機鉱物性粉末、硫酸、燐安、硝安、尿素、塩安等の化学肥料、堆肥等を挙げることができ、これらは単独で若しくは二種以上の混合物の形で使用される。

【0061】液体の担体になりうる材料としては、それ自体溶媒能を有するものの他、溶媒能を有さずとも補助剤の助けにより有効成分化合物を分散させることとなるものから選択され、例えば代表例として次に挙げる担体を例示できるが、これらは単独で若しくは2種以上の混合物の形で使用され、例えば水、アルコール類（例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール、エチレングリコール等）、ケトン類（例えばアセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、ジイソブチルケトン、シクロヘキサノン等）、エーテル類（例えばエチルエーテル、ジオキサン、セロソルブ、ジプロピルエーテル、テトラヒドロフラン等）、脂肪族炭化水素類（例えばケロシン、鉱油等）、芳香族炭化水素類（例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ソルベントナフサ、アルキルナフタレン等）、ハロゲン化炭化水素類（例えばジクロロエタン、クロロホルム、四塩化炭素等）、エステル類（例えば酢酸エチル、ジイソブチルフタレート、ジブチルフタレート、ジオクチルフタレート等）、アミド類（例えばジメチルホルムアミド、

【0062】ジエチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド等）、ニトリル類（例えばアセトニトリル等）、ジメチルスルホキシド類等を挙げることができる。他の補助剤としては次に例示する代表的な補助剤をあげることができ、これらの補助剤は目的に応じて使用され、単独で、ある場合は二種以上の補助剤を併用し、又ある場合には全く補助剤を使用しないことも可能である。有効成分化合物の乳化、分散、可溶化及び／又は湿潤の目的のために界面活性剤が使用され、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアールエーテル、ポリオキシエチレン高級脂肪酸エステル、ポリオキシエチレン樹脂酸エステル、ポリオキシエ

51

チレンソルビタンモノラウレート、ポリオキシエチレンソルビタンモノオレート、アルキルアールスルホン酸塩、ナフタレンスルホン酸縮合物、リグニンスルホン酸塩、高級アルコール硫酸エステル等の界面活性剤を例示することができる。

【0063】又、有効成分化合物の分散安定化、粘着及び／又は結合の目的のために、次に例示する補助剤を使用することもでき、例えばカゼイン、ゼラチン、澱粉、メチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、アラビアゴム、ポリビニルアルコール、松根油、糠油、ペン
10 トナイト、リグニンスルホン酸塩等の補助剤を使用することもできる。固体製品の流動性改良のために次に挙げる補助剤を使用することもでき、例えばワックス、ステアリン酸塩、燐酸アルキルエステル等の補助剤を使用できる。懸濁性製品の解こう剤として、例えばナフタレンスルホン酸縮合物、縮合燐酸塩等の補助剤を使用することもできる。消泡剤としては、例えばシリコン油等の補助剤を使用することもできる。

【0064】有効成分化合物の配合割合は必要に応じて加減することができ、例えば粉剤或いは粒剤とする場合
20 は0.01～50重量%、又乳剤或いは水和剤とする場合も同様0.01～50重量%が適当である。本発明の*

製剤例1.

第1表又は第2表記載の化合物	50部
キシレン	40部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルと アルキルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	10部

以上を均一に混合溶解して乳剤とする。

製剤例2.

第1表又は第2表記載の化合物	3部
クレー粉末	82部
珪藻土粉末	15部

以上を均一に混合粉碎して粉剤とする。

※ ※【0067】

製剤例3.

第1表又は第2表記載の化合物	5部
ペントナイトとクレーの混合粉末	90部
リグニンスルホン酸カルシウム	5部

以上を均一に混合し、適量の水を加えて混練し、造粒、★ ★乾燥して粒剤とする。

製剤例4.

第1表又は第2表記載の化合物	20部
カオリンと合成高分散珪酸	75部
ポリオキシエチレンノニルフェニルエーテルとアル キルベンゼンスルホン酸カルシウムとの混合物	5部

以上を均一に混合粉碎して水和剤とする。

【0068】試験例1 出芽前の水田雑草に対する除草効果試験。

1万分の1アールポットに土壌を詰めて水田状態にし、水田雑草であるイヌビエ、ホタルイの種子を出芽前の状態に調整した。これに本発明化合物(第1表又は第2表に記載の化合物)を有効成分とする薬剤を所定薬量の薬
50

52

*一般式(I)で表されるピリジニ-2,3-ジカルボン酸ジアミド誘導体を有効成分として含有する除草剤は各種雑草を枯殺し若しくは生育を抑制するためにそのまま、又は水等で適宜希釈し、若しくは懸濁させた形で殺草若しくは生育抑制に有効な量を当該雑草に、又は当該雑草の発生若しくは成育が好ましくない場所において茎葉又は土壌に適用して使用すればよい。

【0065】本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を有効成分として含有する除草剤の使用量は種々の因子、例えば目的、対象雑草、作物の生育状況、雑草の発生傾向、天候、環境条件、剤型、施用方法、施用場所、施用時期等により変動するが、有効成分化合物として1ヘクタール当たり0.1g～10kgの範囲から目的に応じて適宜選択すれば良い。本発明の一般式(I)で表される複素環ジカルボン酸ジアミド誘導体を有効成分として含有する除草剤を更に防除対象雑草、防除適期の拡大のため、或いは薬量の低減をはかる目的で他の除草剤と混合して使用することも可能である。

【0066】以下に本発明の代表的な製剤例及び試験例を示すが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、製剤例中、部とあるのは重量部を示す。

液として処理をした。処理21日後に除草効果を調査し、無処理と比較して除草率を算出し、下記の基準に従って判定を行った。

除草活性の判定基準。

5・・・100%の殺草率。
4・・・90%～99%の殺草率。
3・・・70%～89%の殺草率。

53

54

2・・・40%～69%の殺草率。

1・・・1%～39%の殺草率。

0・・・0%の殺草率。

結果を第3表に示す。

【0069】試験例2 出芽後の水田雑草に対する除草効果試験。

1万分の1アールポットに土壤を詰めて水田状態にし、水田雑草であるイヌビエ、ホタルイ及びコナギの種子を*

第3表

No	薬量 (kg/ha)	出芽前処理		出芽後処理		
		イヌビエ	ホタルイ	イヌビエ	ホタルイ	コナギ
3	5	5	5	5	5	5
8	5	5	5	5	5	5
13	5	5	5	5	5	5
18	5	5	5	5	5	5
27	5	5	5	5	5	5
45	5	5	5	5	5	5
46	5	5	5	5	5	5
60	5	5	5	5	5	5
61	5	5	5	5	5	5
73	5	5	5	3	3	5
85	5	5	5	2	2	5
96	5	5	5	5	5	5

*一葉期になるように調整した。これに本発明化合物(第1表又は第2表に記載の化合物)を有効成分とする薬剤の所定薬量の薬液を処理をした。処理21日後に除草効果を調査し、無処理と比較して除草率を算出し、試験例1の基準に従って判定を行った。結果を第3表に示す。

【0070】

【表16】

【0071】

【表17】

第3表 (続き)

No	葉量 (kg/ha)	出芽前処理		出芽後処理		
		12t・I	粉屑	12t・I	粉屑	コナ
97	5	5	5	5	5	5
108	5	5	5	5	5	5
109	5	5	5	5	5	5
110	5	5	5	5	5	5
111	5	5	5	5	5	5
124	5	5	5	5	5	5
125	5	5	5	5	5	5
126	5	5	5	5	5	5
127	5	5	5	5	5	5
128	5	5	5	5	5	5
134	5	5	5	5	5	5
139	5	5	5	5	5	5
142	5	5	5	5	5	5
143	5	5	5	5	5	5
154	5	5	5	4	4	5
155	5	5	5	5	5	5
156	5	5	5	5	5	5
167	5	5	5	4	4	5
180	5	5	5	4	4	5
193	5	5	5	3	3	5
194	5	5	5	4	3	5

【0072】

【表18】

第 3 表 (続き)

No	薬量 (kg/ha)	出芽前処理		出芽後処理		
		イシ・I	イシ・I	イシ・I	イシ・I	コナキ
195	5	5	5	5	4	5
196	5	5	5	4	3	5
197	5	5	5	4	3	5
198	5	5	5	5	4	5
200	5	5	5	4	3	5
202	5	5	5	5	5	5
203	5	5	5	5	5	5
204	5	5	5	4	3	5
205	5	5	5	4	3	5
206	5	5	5	5	4	5
207	5	5	5	5	4	5
208	5	5	5	5	4	5
209	5	5	5	5	5	5
210	5	5	5	5	5	5
221	5	5	4	4	3	5
222	5	5	4	4	3	5
237	5	5	5	5	5	5
239	5	5	5	5	5	5
252	5	5	5	5	5	5
257	5	5	5	5	5	5
262	5	5	5	5	5	5

【0073】試験例 3。出芽前の畑地雑草に対する除草効果。

縦 10 cm × 横 20 cm × 高さ 5 cm のポリエチレン製バットに土壌を詰め、これに畑地雑草であるスズメノテツボウ (Am)、イヌビエ (Ec)、イチビ (Al)、オナモミ (Xs)、ヤエムグラ (Ga)、オオイヌノフグリ (Vp) 及び畑地作物としてコムギ (Wh) 及びダイズ (So) の種子を播種覆土した。これに本発明化合物 (第 1 表又は第 2 表に記載の化合物) を有効成分とする薬剤を所定濃度の散布液として処理した。処理 14 日後に除草効果を調査し、試験例 1 と同様にして殺草率を算出し、判定を行った。同時にダイズ及びコムギに対す

る薬害を調査して、下記の基準に従って判定を行った。

薬害の判定基準。

- 5・・・100%の殺草率。
- 4・・・90%～99%の殺草率。
- 3・・・70%～89%の殺草率。
- 2・・・40%～69%の殺草率。
- 1・・・1%～39%の殺草率。
- 0・・・0%～20%の殺草率 (薬害なし)。

結果を第 4 表に示す。

【0074】

【表 19】

第4表

No	菜量 kg/ha	菜害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
3	5	5	5	5	5	5	5	5	5
8	5	5	4	5	5	5	5	5	5
13	5	5	5	5	5	5	5	5	5
18	5	5	4	5	5	5	5	5	5
27	5	5	4	5	5	5	5	5	5
45	5	5	5	5	5	5	5	5	5
46	5	5	5	5	5	5	5	5	5
60	5	5	5	5	5	5	5	5	5
61	5	5	5	5	5	5	5	5	5
96	5	4	4	5	5	5	5	5	5
97	5	4	4	5	5	5	5	5	5
108	5	5	5	5	5	5	5	5	5
109	5	5	5	5	5	5	5	5	5
110	5	5	5	5	5	5	5	5	5
111	5	5	5	5	5	5	5	5	5
124	5	5	5	5	5	5	5	5	5
125	5	5	5	5	5	5	5	5	5
126	5	5	5	5	5	5	5	5	5
127	5	5	5	5	5	5	5	5	5
128	5	5	5	5	5	5	5	5	5
134	5	5	5	5	5	5	5	5	5

【0075】

【表20】

第4表 (続き)

No	薬量 kg/ha	薬害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
139	5	5	5	5	5	5	5	5	5
142	5	5	4	5	5	5	5	5	5
143	5	5	4	5	5	5	5	5	5
154	5	3	2	4	5	5	4	4	5
155	5	5	4	5	5	5	5	5	5
156	5	5	4	5	5	5	5	5	5
167	5	3	3	4	5	5	3	4	5
180	5	3	3	4	5	5	4	4	5
193	5	2	2	4	4	5	3	3	5
194	5	3	2	4	4	5	4	3	5
195	5	3	3	4	4	5	3	3	5
196	5	3	3	4	4	5	4	3	5
197	5	3	2	5	4	5	3	3	5
198	5	4	3	5	5	5	4	4	5
200	5	2	2	4	4	5	3	3	5
202	5	5	5	5	5	5	5	5	5
203	5	5	5	5	5	5	5	5	5
204	5	3	3	5	4	5	3	4	5
205	5	3	3	4	4	5	4	3	5
206	5	4	3	5	5	5	4	3	5
207	5	4	4	5	5	5	4	3	5

【0076】

* * 【表21】

第4表 (続き)

No	薬量 kg/ha	薬害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
208	5	4	4	5	5	5	4	4	5
209	5	4	4	5	5	5	4	4	5
210	5	5	5	5	5	5	5	5	5
221	5	2	2	4	4	4	3	3	4
222	5	2	2	4	4	5	3	3	4
237	5	5	5	5	5	5	5	5	5
239	5	5	5	5	5	5	5	5	5
252	5	5	5	5	5	5	5	5	5
257	5	5	5	5	5	5	5	5	5
262	5	5	5	5	5	5	5	5	5

【0077】試験例4。出芽後の畑地雑草に対する除草効果。

縦10cm×横20cm×高さ5cmのポリエチレン製バットに土壌を詰め、これに下記に示す畑地有害雑草及び畑作物としてダイズ及びコムギの種子を播種覆土し、各々下記の薬期になるまで生育させ、これに本発明

化合物(第1表又は第2表に記載の化合物)を有効成分とする薬剤を所定濃度の散布液として処理した。処理14日後に除草効果を調査し、試験例1と同様にして殺草率を算出し、判定を行った。同時にダイズ及びコムギに対する薬害を調査して、試験例1に準じて判定を行った。供試雑草主及びその薬期並びにダイズ及び小麦の薬

期。

ノスズメノテッポウ (Am)	1～2葉期
イヌビエ (Ec)	1～2葉期
イチビ (Al)	2葉期
オナモミ (Xs)	2葉期
ヤエムグラ (Ga)	1葉期
オオイヌノフグリ (Vp)	子葉～1葉期
コムギ (Wh)	2葉期
ダイズ (So)	1葉期

結果を第5表に示す。
【0078】

10*【表22】

*

第5表

No	莠量 kg/ha	莠害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
3	5	5	5	5	5	5	5	5	5
8	5	5	5	5	5	5	5	5	5
13	5	5	5	5	5	5	5	5	5
18	5	5	5	5	5	5	5	5	5
27	5	5	5	5	5	5	5	5	5
45	5	5	5	5	5	5	5	5	5
46	5	5	5	5	5	5	5	5	5
60	5	5	5	5	5	5	5	5	5
61	5	5	5	5	5	5	5	5	5
96	5	5	5	5	5	5	5	5	5
97	5	5	5	5	5	5	5	5	5
108	5	5	5	5	5	5	5	5	5

【0079】

30 【表23】

第 5 表 (続き)

No	葉量 kg/ha	葉害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
109	5	5	5	5	5	5	5	5	5
110	5	5	5	5	5	5	5	5	5
111	5	5	5	5	5	5	5	5	5
124	5	5	5	5	5	5	5	5	5
125	5	5	5	5	5	5	5	5	5
126	5	5	5	5	5	5	5	5	5
127	5	5	5	5	5	5	5	5	5
128	5	5	5	5	5	5	5	5	5
134	5	5	5	5	5	5	5	5	5
139	5	5	5	5	5	5	5	5	5
142	5	5	4	5	5	5	5	5	5
143	5	5	4	5	5	5	5	5	5
154	5	4	4	5	5	5	5	4	5
155	5	5	5	5	5	5	5	5	5
156	5	5	5	5	5	5	5	5	5
167	5	5	5	4	5	5	4	4	5
180	5	4	4	4	5	5	5	4	5
193	5	3	3	4	4	5	4	4	5
194	5	3	3	4	4	5	4	4	5
195	5	4	4	4	4	5	3	4	5
196	5	4	4	4	4	5	4	4	5

【 0 0 8 0 】

【 表 2 4 】

67
第5表 (続き)

68

No	薬量 kg/ha	薬害		除 草 効 果					
		Wh	So	Am	Ec	At	Xs	Ga	Vp
197	5	4	3	5	4	5	4	4	5
198	5	4	4	5	5	5	5	5	5
200	5	3	3	4	4	5	3	3	5
202	5	5	5	5	5	5	5	5	5
203	5	5	5	5	5	5	5	5	5
204	5	4	4	5	4	5	4	4	5
205	5	4	4	4	4	5	4	4	5
206	5	4	4	5	5	5	4	4	5
207	5	4	4	5	5	5	4	4	5
208	5	4	4	5	5	5	4	4	5
209	5	4	4	5	5	5	4	4	5
210	5	5	5	5	5	5	5	5	5
221	5	3	3	4	4	4	4	4	4
222	5	3	3	5	4	5	3	3	4
237	5	5	5	5	5	5	5	5	5
239	5	5	5	5	5	5	5	5	5
252	5	5	5	5	5	5	5	5	5
257	5	5	5	5	5	5	5	5	5
262	5	5	5	5	5	5	5	5	5

フロントページの続き

(72)発明者 村井 政彦

Fターム(参考) 4H011 AB01 AB02

京都府向日市物集女町坂本12-4、A-305